

Patent Abstracts of Japan

(3)

PUBLICATION NUMBER : 10166519  
PUBLICATION DATE : 23-06-98

APPLICATION DATE : 12-12-96  
APPLICATION NUMBER : 08352744

APPLICANT : NIPPON SYNTHETIC CHEM IND CO LTD:THE;

INVENTOR : SUZUKI KEITA;

INT.CL. : B32B 27/30 B32B 23/08

TITLE : LAMINATING METHOD

ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To prevent knick (like buckling), wrinkle or longitudinal wave defects from developing by a method wherein a polyvinyl alcohol-base film, one side of which is prepared so as to have a specified value of water content and then processed at a specified temperature and under a specified nip linear pressure, is laminated to a cellulose-based film.

SOLUTION: At the lamination of a cellulose-based film and a polyvinyl alcohol (henceforth expressed as PVA)-based film to each other, the PVA-based film, at least one side of which is prepared so as to have a water content of 0.1-20wt.%, is calendered at 5-45°C under the nip linear pressure of 50-10,000kg/m, is employed. When the water content is below 0.1wt.%, knick (such as buckling) and wrinkle defects increase. While when the water content exceeds 20wt.%, longitudinal wave defects increase. When the temperature during a calendering is below 5C, longitudinal wave defects in a laminate increase, while when its temperature exceeds 45°C, knick and wrinkle defects increase. Further, when the nip linear pressure is below 50kg/m, longitudinal wave defects in the laminate increase, while when the nip linear pressure exceeds 10,000kg/m, scratch defects increase.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO

(3)

(19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-166519

(43)公開日 平成10年(1998)6月23日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>  
B 32 B 27/30  
23/08識別記号  
102F I  
B 32 B 27/30  
23/08

102

審査請求 未請求 請求項の数6 FD (全9頁)

(21)出願番号 特願平8-352744

(22)出願日 平成8年(1996)12月12日

(71)出願人 000004101

日本合成化学工業株式会社  
大阪府大阪市北区大淀中一丁目1番88号  
梅田スカイビル タワーイースト(72)発明者 清水 俊宏  
岐阜県大垣市神田町2丁目35番地 日本合  
成化学工業株式会社大垣工場内(72)発明者 鈴木 恵太  
大阪府茨木市室山2丁目13番1号 日本合  
成化学工業株式会社中央研究所内

(54)【発明の名称】 積層法

(57)【要約】

【課題】 クニック欠陥、シワ欠陥、タテナミ欠陥がな  
く外観性に優れたセルロース系フィルムとポリビニルアル  
コール系フィルムとの積層体を得る積層方法を提供す  
る。【解決手段】 セルロース系フィルムとポリビニルアル  
コール系フィルムとをロールラミネートするにあたり、  
含水量が0.3~1.6.5重量%に調整された、ポリビ  
ニルアルコール系フィルムの少なくとも片側の表面を5  
~45°Cで、ニップ線圧50~1000kg/mのカ  
レンダーロールで処理をした後に、ラミネートする。

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 セルロース系フィルムとポリビニアルコール系フィルムとをロールラミネートするにあたり、含水量が0.1～20重量%に調整されたポリビニアルコール系フィルムの少なくとも片側の表面を5～45°Cで、ニップ線圧50～10000kg/mのカレンダーロールで処理されてなるポリビニアルコール系フィルムを用いることを特徴とする積層法。

【請求項2】 カレンダーロールで処理された後のポリビニアルコール系フィルムの含水量が0.3～16.5重量%であることを特徴とする請求項1記載の積層法。

【請求項3】 カレンダーロールで処理された後のポリビニアルコール系フィルム面の光沢度(60°)が90(度)以上であることを特徴とする請求項1又は2記載の積層法。

【請求項4】 カレンダーロールに、0.1～1.5Sの表面粗度の金属ロールを用いることを特徴とする請求項1～3いずれか記載の積層法。

【請求項5】 ポリビニアルコール系フィルムが偏光フィルム又は位相差フィルムであることを特徴とする請求項1～4いずれか記載の積層法。

【請求項6】 セルロース系フィルムが三酢酸セルロースフィルムであることを特徴とする請求項1～5いずれか記載の積層法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、セルロース系フィルムとポリビニアルコール系フィルムとの積層法に関し、更に詳しくは、外観欠陥が少なく、外観品質が良好な偏光板や位相差板等の光学積層体の製造時に特に有用な積層法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】従来より、ポリビニアルコール(以下、PVAと称することがある。)系の偏光板や位相差板は、偏光フィルムや位相差フィルムの両側にセルロース系フィルムが設けられた構造を有しており、かかる偏光板や位相差板を製造するにあたっては、通常、水系接着剤を用いたウェットラミが行われ、具体的には、①先に接着剤を偏光フィルム(又は位相差フィルム)の両側に塗っておき三酢酸セルロース(以下TACと称することがある。)フィルムとのラミネートを片側ずつ繰り返す方法、②先に接着剤を偏光フィルム(又は位相差フィルム)の両側に塗っておき同時に両側のTACフィルムとのラミネートを行う方法、③先に接着剤を各TACフィルムの片側に塗っておき偏光フィルム(又は位相差フィルム)とのラミネートを片側ずつ繰り返す方法、④先に接着剤を各TACフィルムの片側に塗っておき同時に両側の偏光フィルム(又は位相差フィルム)とのラミネートを行う方法、⑤先に接着剤を一方のTACフィルム

の片側に塗っておき偏光フィルム(又は位相差フィルム)とラミネートし二層積層体を得て、かかる二層積層体の偏光フィルム(又は位相差フィルム)側に更に接着剤を塗りもう一方のTACフィルムとラミネートを行う方法、⑥先に接着剤を偏光フィルム(又は位相差フィルム)の片側に塗っておき一方のTACフィルムとラミネートし二層積層体を得て、次にもう一方のTACフィルムの片側に接着剤を塗り、かかるTACフィルムと二層積層体とラミネートを行う方法、⑦偏光フィルム(又は位相差フィルム)とTACフィルムと三層同時に接着剤の塗工及びラミネートをおこなう方法(スクイーズコートアンドラミネーション)の7つの方法があり、かかる積層法については、ラミネート時に、基材に傷つけないこと、遺漏残存接着剤などの異物でラミロールを汚さないこと、静電気を極端に発生させないこと等の程度であり、とりわけ注意すべき点はなく、積層時の難易度においても容易な技術であった。

【0003】一方でかかる偏光板や位相差板を用いた液晶表示装置の進歩はここ数年来激しく、以前は小型のウォッチ等のTNタイプ液晶表示装置だけであったが、最近ではノート型パソコン、カーナビゲーションに代表されるSTNタイプ液晶表示装置、TFTタイプ液晶表示装置が発明され実使用されだした、特にTFTタイプ液晶表示装置の進歩は著しくCRT表示装置のみの大型表示と表示品位が可能となってきた。

【0004】それにともない、液晶表示装置内のガラスセル、液晶物質、偏光板、位相差板等の各部品の各種性能向上と同時にそれらのなかの欠陥も益々小さくかつ数が少ないと要求されるようになってきた。偏光板においても、8セグメント白黒表示だけであったものがノート型パソコンやカーナビゲーションに実装され、より詳細・精密なカラー動画表示に至って、光学性能、耐久性能、視認性、外観品質、大型面積化、光学性能むら減少等さまざまな性能の向上が要求されるようになってきた。偏光板製造現場においても、かつての小型のウォッチ等のTNタイプ用偏光板製造の時は、欠陥において、サイズも100～700μmで、個数も5～35個/m<sup>2</sup>であったものが、現在のTFTタイプ偏光板製造の時は、欠陥がない(つまりは0個/m<sup>2</sup>である)ことを要求され、現実には60～100μmで1個/m<sup>2</sup>以下の0.05個/m<sup>2</sup>が要求されている時代になってきており、急加速的に製造法の革新が要求されつづけてきた。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】そこで本発明者はセルロース系フィルムとポリビニアルコール系フィルムの積層体の更なる外観向上を目的として、セルロース系フィルムとポリビニアルコール系フィルムの積層時のポリビニアルコール系フィルムの含水量について検討をおこなったが、特開昭56-159109号公報や特開平7-120617号公報に記載の如き、該含水量を數

%に調整するのみではなかなか満足できるものは得られず、更なる検討が必要となってきた。かかる積層体の外観向上とは、積層体の表面に発生する凹凸欠陥、即ち、クニック欠陥（セルロース系フィルム及びその積層体に発生する欠陥で、微細で局部的な凹凸状の折れ・座屈欠陥であり、大きさは60～1500μmあり、ピラミッド、バンド痕とも言われている。）、シワ欠陥（ラミネートする際に、セルロース系フィルム、ポリビニルアルコール系フィルムやその積層体に発生する欠陥で、ライン方向（基材長手方向）に筋状として発生する微細な折れ欠陥であり、大きさは30～3500μmある。）、タテナミ欠陥（ラミネートする際に、セルロース系フィルム、ポリビニルアルコール系フィルムやその積層体に発生する欠陥で、ライン方向（基材長手方向）に高さ0.1～1.0mmでトタン板状として発生する波状欠陥であり、繰り返しピッチの大きさは30～250mmある。）を少なくすることを意味し、本発明では、セルロース系フィルムとポリビニルアルコール系フィルムとの積層体、特にはTFTタイプ液晶表示装置用の偏光板及び位相差板（まとめて称する時は光学積層体と称する。）に好ましく、かかる欠陥の発生の少ない積層法を提供することを目的とする。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】しかるに、本発明者はかかる課題を解決すべく、ラミネート前のポリビニルアルコール系フィルムの処理の方法に関して鋭意研究を重ねた結果、セルロース系フィルムとポリビニルアルコール系フィルムとをロールラミネートするにあたり、含水量が0.1～20.0重量%に調整されたポリビニルアルコール系フィルムの少なくとも片側の表面を5～45℃で、ニップ線圧50～10000kg/mのカレンダーロールで処理した後に、カレンダーロール処理後のポリビニルアルコール系フィルムの含水量を0.3～1.6.5重量%にしたり、更にはカレンダーロール処理後のポリビニルアルコール系フィルムの処理面の光沢度（60°）が90（度）以上でラミネートすることにより表面凹凸欠陥、即ち、クニック欠陥、シワ欠陥、タテナミ欠陥のない外観に優れた積層体が得られ、更にはカレンダーロールに0.1～1.5Sの表面粗度の金属ロールを用いることにより、特に本発明の効果を顕著にできることを見いだし本発明を完成するに到った。

【0007】尚、本発明では、PVAフィルムへヨウ素化合物の吸着配向により偏光性能が付与されたフィルムを「偏光フィルム」と称し、該「偏光フィルム」の両面（又は片面）に保護フィルムのTACフィルムを設けた時「偏光板」と称して区別している。又、PVAフィルムを延伸して位相差性能を付与されたフィルムを「位相差フィルム」と称し、該「位相差フィルム」の両面（又は片面）に保護フィルムのTACフィルムを設けた時「位相差板」と称して区別している。

## 【0008】

【発明の実施の形態】以下、本発明について具体的に説明する。本発明の積層法で使用される基材について述べる。本発明で使用されるセルロース系フィルムの原料となるセルロースエステルとしては、セルロースと酸のエステルであれば特には限定しないが、好ましくは、セルロースと脂肪酸のエステルで、セルローストリニアセテート、セルロースジアセテート、セルローストリブロビオネット、セルロースジブロビオネット等が使用される。

かかるセルロース系フィルムの原料の光学積層体用途のものとしては、低複屈折の面と高透過率の面よりセルローストリニアセテート（三酢酸セルロース）が好適であり、該三酢酸セルロースフィルム（TACフィルム）の市販品としては具体的に、富士写真フィルム社製「UV-50」、「SH-50」、「UV-80」、「SH-80」、「TD-80U」や、コニカ社製の「三酢酸セルロース80μmシリーズ」、ロンザジャパン社製「三酢酸セルロース80μmシリーズ」等を挙げることができ、これらの中で、透過率と耐久性の面でTFTタイプ液晶表示装置に適合する改善を行ったTACフィルムが更に好ましい。該セルロース系フィルムの厚みは特には限定されないが、20～150μmが好ましく、更には50～85μmが好ましい。尚、これらのセルロース系フィルムは、ラミネートにての接着補強のために、通常、その接着面をアルカリケン化やコロナ処理等の表面改質されて実用に供される。

【0009】本発明で使用されるポリビニルアルコール系フィルムの原料（ポリビニルアルコール系樹脂）は、通常酢酸ビニルを重合したポリ酢酸ビニルをケン化して製造されるものであるが、本発明では、これに限定されるものではなく、少量の不飽和カルボン酸（塩、エステル、アミド、ニトリル、等を含む）、オレフィン類、ビニルエーテル類、不飽和スルホン酸塩類等、酢酸ビニルと共に重合可能な成分を含有していてもよい。ポリビニルアルコール系フィルムとしてはかかる原料を使用していれば特には限定しないが、ポリビニルアルコール系樹脂を製膜した後にヨウ素化合物とホウ素化合物処理によって得られる偏光フィルムやポリビニルアルコール系樹脂を製膜した後に130～230°Cで1.01～1.45倍の延伸処理によって得られた位相差フィルムがあり、更にはTFTタイプ液晶表示装置に適する高偏光度、高透過率の偏光フィルムや低リターデーション（3～50nm）の位相差フィルムが好ましい。該ポリビニルアルコール系フィルムの厚みは特には限定されないが、20～150μmが好ましく、更には45～85μmが好ましい。

【0010】本発明では、セルロース系フィルムとポリビニルアルコール系フィルムとをロールラミネートするにあたり（積層時の前に）、あらかじめポリビニルアルコール系フィルムの含水量を0.1～20.0重量%に

調整し、ポリビニルアルコール系フィルムの少なくとも片側の表面を5～45°Cで、ニップ線圧50～1000kg/mのカレンダーロール処理をほどこした後に、ラミネートすることを最大の特徴とするもので、以下、各工程順に説明をする。

【0011】ポリビニルアルコール系フィルムのカレンダーロール処理前の含水量は、0.1～20.0重量%であることが必要で、含水量が0.1重量%未満の時はポリビニルアルコール系フィルムが堅くなりすぎて、カレンダーロールの処理が不十分になり、ラミネート後の積層体のクニック欠陥とシワ欠陥が増え、不都合であり、20.0重量%を越える時はカレンダーロールとポリビニルアルコール系フィルムとの密着力が増加して、ポリビニルアルコール系フィルムと積層体のタテナミ欠陥が増えて不都合である。

【0012】かかるポリビニルアルコール系フィルムが、偏光フィルムの場合は2.5～17.5重量%が好ましく、更には3.5～16.5重量%が好ましい。位相差フィルムの場合は0.3～6.0%重量%が好ましく、更には0.5～4.5重量%が好ましい。かかる含水量にコントロールする方法としては公知の方法を採用することができ、例えば、ポリビニルアルコール系フィルムの含水量が20.0重量%を越える時は、シリンドーロールタイプドライヤー、熱風ドライヤー、熱風フローティングドライヤー等により乾燥すればよく、また逆にかかる含水量が0.3重量%未満の時は、15～30°C、75～95%RHの調湿室にて3～600分エーシングして、かかる含水量にコントロールすることができるが、いずれの場合もこれらに限定されるものではない。

【0013】次に、含水量の調整されたポリビニルアルコール系フィルムは、その表面をカレンダーロール処理されるわけであるが、かかるカレンダーロールでの処理とは、通常、表面が平滑で温度コントロール可能なカレンダーロールによって、ポリビニルアルコール系フィルムの表面を加圧しながら表面改質処理する工業処理のことと意味するものであるが、かかるカレンダーロール処理には、1回の処理で片側だけ行う処理と両面を同時に行う処理の2種類の方法があり、また、カレンダーロールにもカレンダー仕上げロールとカレンダーパックロールの2種類のロールがあり、これらのロールの使い方で、2種類の方法を決めることが可能である。ポリビニルアルコール系フィルムの片側だけの表面をカレンダーロール処理する方法は、カレンダー仕上げロールとカレンダーパックロールでポリビニルアルコール系フィルムを挟み込み処理する方法であり、両面を同時に処理を行う方法は1対のカレンダー仕上げロールで挟み込み処理する方法であるが、カレンダーロール処理としてはこれらに限定されるものではない。

【0014】次にカレンダーロール処理の条件とその装

10

20

30

40

50

置について更に具体的に述べる。かかるカレンダーロール処理の温度は5～45°Cが好ましく、5°C未満の温度では、カレンダーロールの結露によるポリビニルアルコール系フィルム及びその積層体のタテナミ欠陥が増加し、45°Cを越えると積層体のクニック欠陥とシワ欠陥が増加し不都合である。かかるカレンダーロールの温度コントロール方法としては、通常、カレンダーロールの内部に、熱交換用の配管や誘電加熱装置を配備することにより、温度コントロールを可能としているが、これらに限定するものではない。

【0015】また、カレンダーロール処理時のニップ線圧は、50～10000kg/mが好ましく、50kg/m未満の時は積層体のタテナミ欠陥が増加し、10000kg/mを越える時は、ポリビニルアルコール系フィルム表面のスリキズ欠陥が増加し不都合である。かかるニップ線圧力は、通常、これらのロールの少なくとも片側のロールの両端軸と軸受け部に設けられた加圧装置によりラミネート時の線圧力をコントロールすることができるが、これに限定されるものではない。

【0016】かかるカレンダーロールについて述べる。カレンダーロールは、前述のように、通常、カレンダー仕上げロールとカレンダーパックロールの2種類よりも、カレンダー仕上げロールとしては、表面が平滑でありフィルムにスリキズ欠陥を発生させないロールであれば、特に限定しないが、以下のゴムロールと金属ロールが実用的で好ましく、よりスリキズ欠陥発生の可能性が低い金属ロールが更には好ましい。

【0017】カレンダー仕上げロール用のゴムロールとしては、表面のゴム硬度(JIS K 6301の硬さ試験のスプリング式硬さ試験A形の試験法に準じて測定)が85～90(度)(更に好ましくは87～88(度))であるロールが好ましく、硬度が85(度)未満の時は、ゴムにバルジ効果(つきあたっているゴムの先端が凹み変形している現象)による食い込みが発生しスリキズ欠陥が発生したり、ロール自体が傷つきその傷によりに更にポリビニルアルコール系フィルムに欠陥を発生させ、逆に90(度)を越える時は、ニップされない局部非ニップ点が発生しスリキズを発生させ不都合である。具体的には、ゴムロールの素材としては、EPDM(エチレンポリプロピレンゴム)、NBR(ニトリルブチルゴム)、シリコン、エボナイトが好ましい。尚、85～90(度)に硬化させた後にこれらの素材のゴムロールの表面を1500～3000番のサンドペーパーやエメリーペーパーにて回転研磨すると更に良い。

【0018】カレンダー仕上げロール用の金属ロールとしては、表面粗度は0.1～1.5Sが好ましく、0.1S未満の時は、鏡面すぎて密着力が増大しポリビニルアルコール系フィルム表面にスリップ痕を発生させ、また1.5Sを越える時は、ポリビニルアルコール系フィルム表面にスリキズを発生させ不都合である。尚、金属

の表面に5~40 μmの厚みのニッケルの下メッキをして、その上に更に5~60 μmの厚みのハードクロムメッキをして、かかる表面(最外表面)が0.1~1.5 Sであれば好ましく、更には、かかる構成のその上にポリテトラフルオロエチレン樹脂(テフロン樹脂)を1~55 μm厚みだけコーティングしてその表面(最外表面)を0.1~1.5 Sに研磨したものが、ロールの汚れ除去の面も含め最適である。

【0019】カレンダーバックロール用としてのロールは、特には限定しないが、スリップを発生させない点で、金属ロールよりゴムロールのほうがよく、かかるゴムロールとしても、特には限定しないが、フィルムに傷をつけない点で、表面のゴム硬度(JIS A)が60~75(度)(更に好ましくは65~70(度))であるロールが好ましく、硬度が60(度)未満の時は、ゴムにバルジ効果(つきあたっているゴムの先端が凹み変形している現象)による食い込みが発生しスリキズ欠陥が発生したり、ロール自体が傷つきその傷によりに更にボリビニルアルコール系フィルムに欠陥を発生させ、逆に75(度)を越える時もスリキズを発生させ不都合である。具体的には、ゴムロールの素材としては、EPDM(エチレンポリプロピレンゴム)、NBR(ニトリルブチルゴム)、シリコンが好ましい。尚、60~75(度)に硬化させた後に、これらの素材のゴムロールの表面を600~2000番のサンドペーパーにて回転研磨すると更に良い。

【0020】尚、カレンダーロールの直径は、特には限定されないが、通常、直径(外径)が50~400mmのものが使用され、好ましくは、75~350mmの直径がよく、75mm未満の時は、ロール自体がベンディングしたり、フィルムを屈曲させすぎて、できあがる積層板の表面が凹凸欠陥となり不都合である。また300mmを越える時は、ニップ保持が弱くなりフィルムがすべる傾向が増加して同じく不都合である。またカレンダーロールの構造も、特には限定しないが、カレンダーロール処理中の振動防止のためイナーシャーの重いロール(重量の重いロール)が好ましい。

【0021】次に、カレンダーロール処理の具体的方法について述べるが、本発明はこれらの方法に限定されるものではない。通常、表面の片側だけをカレンダーロール処理する時は、カレンダー仕上げロールの直径をカレンダーバックロールの直径よりも大きくして、かかるカレンダー仕上げロールにセルロース系フィルムを角度180~270度添わしながら(抱かしながら)カレンダーバックロールにてニップされカレンダーロール処理される。また、両面を同時にカレンダーロール処理する時は、上記のように、カレンダー仕上げロールの2つのロールのうちどちらかのロールを大きくして、大きいロールに添わせて小さいロールでニップする方法と、2つのロールを同径にしておき、その間をロールに添わせずに

引き抜くように処理する方法とあるが、処理時の振動防止の点では、前記の片側だけの処理をフィルムの両面に順次行う方法が好ましい。

【0022】かかるカレンダーロール処理の速度は、特には限定されないが、通常1~15m/分でおこなわれ、好ましくは3~10m/分でおこなわれる。カレンダーロールの表面速度は、片側をカレンダーロール処理する場合は、カレンダーバックロールとカレンダー仕上げロールの表面速度は異なり、同時に両面をカレンダーロール処理する場合、2本のカレンダー仕上げロールの表面速度は同一である。片側をカレンダーロール処理する場合は、カレンダーバックロールは、フィルム速度(ライン速)と同速度に設定され、カレンダー仕上げロールは、フィルム速度より0.1~4%增速されている。また、カレンダーバックロール速度がカレンダー仕上げロールと同一になり(つまりは0.1~4%增速の速度)カレンダーバックロール側のボリビニルアルコール系フィルム表面にスリキズを発生させないように装置的に工夫がされている。

【0023】その方法には、(I)ボリビニルアルコール系フィルムの幅とカレンダーバックロールの幅を揃えたうえに、カレンダーバックロール及びカレンダー仕上げロールに別々に駆動する方法、(II)ボリビニルアルコール系フィルムの幅とカレンダーバックロールの幅を揃えたうえに、カレンダーバックロールは駆動しない

(ライン速度につれ回りしてフリー回転)が、カレンダー仕上げロールは駆動する方法、(III)ボリビニルアルコール系フィルムの幅とカレンダーバックロールの幅を揃えずに、カレンダーバックロールとカレンダー仕上げロールの間にクリアランス調整装置を配置してフィルム分の厚み分のクリアランス(厳密には厚み分より若干1~15μm狭いクリアランスに設定)を確保してロールの接触を防止し、カレンダーバックロールは駆動しない(ライン速度につれ回りしてフリー回転)が、カレンダー仕上げロールは駆動する方法がある。かかるカレンダー仕上げロールの增速が0.1%未満の時は、カレンダーロール処理の効果がなく、4%を越える時はフィルム張力が増大しすぎて不都合となる。両側を同時にカレンダーロール処理する時は、2本のロールともフィルム速度より同じく0.1~4%增速されており、また2本のロールとも駆動が付いている。

【0024】尚、かかるカレンダーロール処理の入口側の張力は、特には限定されないが、カレンダー仕上げロールが增速するために通常5~130kg/1m幅となり、出口側張力も特には限定しないが、通常1~25kg/1m幅となるが、安定にカレンダーロール処理するために、入口側は15~25kg/1m幅、出口側が10~15kg/1m幅とするのが好ましい。かかる張力を制御するにあたり、カレンダーロールの前後にある基材の数(2本)の張力検知ロールで張力を検知しなが

40

【0024】尚、かかるカレンダーロール処理の入口側の張力は、特には限定されないが、カレンダー仕上げロールが增速するために通常5~130kg/1m幅となり、出口側張力も特には限定しないが、通常1~25kg/1m幅となるが、安定にカレンダーロール処理するために、入口側は15~25kg/1m幅、出口側が10~15kg/1m幅とするのが好ましい。かかる張力を制御するにあたり、カレンダーロールの前後にある基材の数(2本)の張力検知ロールで張力を検知しなが

ら、カレンダーロールの前後の駆動フィードロールの速度やトルクを制御したり、ダンサーロールの加圧力を制御したり、カレンダーロール処理の前後のフィルムの張力を制御することができる。かかるカレンダーロール処理は、通常、清浄な環境、好ましくは温度15～25°C、湿度50～70%RHのクリーン度10000～100CFDのクリーンルーム内でおこなわれる。また、カレンダーロール処理の回数について、本発明はポリビニルアルコール系フィルムの少なくとも片側面をカレンダーロール処理すればその効果があらわれるが、更には両面をカレンダーロール処理することが好ましく、カレンダーロールを他列に配置して、両面を2～10回カレンダーロール処理（好適には2～4回）するのが好ましい。

【0025】かくしてカレンダー仕上げロールに接触した面が平滑で、局部の凹凸も除去され、光沢が増加したポリビニルアルコール系フィルムが得られるが、かかるカレンダーロール処理面の光沢度（60°）（日本電色製のVG-1D光沢計で反射率を測定。但し、本発明では、フィルム表面の最大測定値のことを示す。）が、90以上の時、好ましくは93～98（度）の時、セルロース系フィルムとポリビニルアルコール系フィルムのラミネート（積層）時に本発明の効果を最も発揮でき、90未満の時はラミネートして積層体とした時に、クニック欠陥が増加する傾向があり、かかるコントロール方法としてはポリビニルアルコール系フィルムの含水量、カレンダーロール処理時の温度、ニップ線圧、カレンダー仕上げロールの增速の割合等によりコントロールされ、含水量が多い時、温度が高い時、圧力が高い時、增速の割合が多い時は、おむね光沢度が上がる傾向にあるが、これらの関係は交互作用をもち、必ずしも一次関数的（リニア）に増加するとは限らない。

【0026】次にセルロース系フィルムとポリビニルアルコール系フィルムのラミネート（積層）の方法について述べる。上記の如くカレンダーロール処理されたポリビニルアルコール系フィルムは、セルロース系フィルムと積層されるわけであるが、この時（積層前）の含水量を0.3～16.5重量%とすることも、本発明では有用であり、0.3重量%未満の時は、積層体のクニック欠陥が増加する傾向があり、16.5重量%を超える時は、タテナミ欠陥が増加する傾向があり不都合である。かかる含水量のコントロール方法は、カレンダーロール処理前のフィルムの含水量のコントロール方法と同一であるとともに特に限定されないが、カレンダーロール処理後に上記重量%の範囲に入っている時には、含水量の（再）コントロールは省略されることもある。

【0027】かくして含水量が調整されたポリビニルアルコール系フィルムとセルロース系フィルムとがラミネートされ積層体がえられるわけであるが、かかるラミネートにあたっては通常接着剤が用いられ、かかる接着剤

としては乾燥固化後に透明であれば、特に限定しないが、本発明の効果を顕著に得るには水系接着剤が好ましく、その中でも特に耐久性の点より重合度500～4500、ケン化度90～99.9モル%のポリビニルアルコールの1～20重量%水溶液が好適である。

【0028】実際に積層するにあたっては上記の如き①～⑦の公知の積層法を採用することができ、①～⑥の方法は先に積層する基材にあらかじめ水系接着剤を塗工する必要があり、コーティングが用いられ、具体的には、使用する基材に傷をつけずに薄く塗工でき発泡の少ないマイクログラビアコーティング、マングルロールコーティング、ダイコーティング、スponジロールコーティング、エクセヌロールコーティング等があり使用される。⑦の方法は、コーティングとラミネーターとが同一箇所でおこなわれるスクイーズコートアンドラミネーションと呼ばれ、フィルムに発生するカールを抑制する点、製造効率の点と設備の簡便さの点で、⑦の方法が好ましく実用的である。⑦の方法をより具体的に説明すれば、以下の2通りの方法がある。

【0029】(I) ラミネートロールを水平に2本並べて、その間にラミネートロールの上よりセルロース系フィルム（左）／ポリビニルアルコール系フィルム／セルロース系フィルム（右）の順に走行させ挟み、ラミネートされた積層板をロールの下に垂らして走行させ、接着剤をロールの上よりセルロース系フィルム（左）／ポリビニルアルコール系フィルムの間とポリビニルアルコール系フィルム／セルロース系フィルム（右）の間に給液する方法。

(II) ラミネートロールを垂直に2本並べて、その間にラミネートロールの片側横よりセルロース系フィルム（垂直）／ポリビニルアルコール系フィルム（垂直に対して45度角）／セルロース系フィルム（水平）の順に走行させ挟み、ラミネートされた積層板をロールのもう一方の横側より走行させ、接着剤をセルロース系フィルム（垂直）／ポリビニルアルコール系フィルム（垂直に対して45度角）の間とポリビニルアルコール系フィルム（垂直に対して45度角）／セルロース系フィルム（水平）の間に給液する方法。これらのうち、浮力による接着剤中の気泡の脱泡の点とカール抑制の点から(I)の方法が実用的で好ましい。

【0030】かかるラミネートには、(イ)両側に2本1組のラミネートロールを配置し、ラミネート基材用フィルムの2～3枚（つまりセルロース系フィルム／ポリビニルアルコール系フィルム、ポリビニルアルコール系フィルム／セルロース系フィルム、セルロース系フィルム／ポリビニルアルコール系フィルム／セルロース系フィルム）をこれにて挟みラミネートする方法と、(ロ)片側にラミネートロールを配置し、もう片側にエアースリット又はエアナライフを配置し、この間に上記2～3枚のラミネート基材用フィルムを通し、ラミネートロールに各フィルムを添わしながらエアースリット又はエア

ーナイフより出た圧縮空気により押さえこみラミネートする方法とがあり、ラミネート工程の付近の空気の流れを乱さないという利点より前者（イ）の方法がとられる。

【0031】かかるラミネート工程で使用されるラミネートロールとしては、通常、表面が平滑で傷のないゴムロール、金属ロール、金属ロールの表面に汚れ防止のためにテフロン又はシリコンコーティングされたロール（コーティングロール）が使用される。ラミネート時の線圧力は特に限定されないが、工業的には、線圧力は10～1000kg/mが好ましい。各フィルムの張力は特に限定されないが、工業的には張力1～20kg/幅が好ましく、ラミネートロールの前後にある基材の数（⑦の方法なら4本）の張力検知ロールで張力を検知しながら、ラミネートロールの前後の駆動フィードロールの速度やトルクを制御したり、ダンサーロールの加圧力を制御したり、巻出ブレーキを制御することでラミネート時の各フィルムの張力を制御することができる。

【0032】また、ラミネートの速度は、特に限定されないが、1～15m/分が好ましい。ラミネートロールの温度は、特に限定されないが、温度10～45°Cが好ましく、この範囲からはずれる時は、シワが発生する傾向が強く好ましくない。かかるラミネートロールの温度をコントロールするには、軸受け部にロータリーショントやスリップリングを装着させた軸受けを使用し、かかるロールの内部に温度コントロール配管を有したり、誘電加熱装置を内在するロールを用いることで対応できる。かかる処置をともなった積層後に、30～100°C、1～10分で乾燥処理されてクリック欠陥、シワ欠陥、タテナミ欠陥のない外観良好な積層体となる。

【0033】かかる積層法は、偏光板や位相差板等の光学積層体特に有用で、透過率と耐久性の面でTFTタイプ液晶表示装置に適合する改善を行っていないタイプのTACフィルムばかりでなく、改善タイプのTACフィルムに対して有用であるが、これらのフィルムの片側表面に厚み1～10μmのクリアハードコート層やアンチグレアハードコート層を塗工したTACフィルム、更にそれらのタイプのTACフィルムの表面にITO層、防汚処理層、帯電防止層、低反射層等の各種機能を付与する層を設けた積層TACフィルムに対しても有用であり、クリック欠陥、シワ欠陥、タテナミ欠陥がない偏光板や位相差板が得られ、ワープロ、テレビジョン、パソコン、カーナビゲーション等の用途のTFTタイプ液晶表示装置に好適である。

【0034】以上、偏光板や位相差板等の光学積層体の積層法について説明したが、本発明はこれらの光学積層体に限定されるものではなく、他のポリビニルアルコール系フィルムとセルロース系フィルムのラミネートフィルムについても、つまりはフィルムコンデンサー、マンガのセル画面用プレート、防墨用フィルム、防眩フィル

ム、スリガラス用途フィルム、着色フィルム等に用いられるポリビニルアルコール系フィルムとセルロース系フィルムとの積層体の製造時に有用である。

#### 【0035】

【実施例】次に実施例を挙げて更に詳しく説明する。尚、実施例中、「%」とあるのは特に断りのない限り重量基準である。

#### 実施例1

平均重合度5500、ケン化度9.9.6モル%のポリビニルアルコールを水に溶解し2.0%の溶液を得た。該溶液をポリエチレンテレフタレートフィルム上に流延後乾燥し原反フィルム（65μm、幅1200mm）を得た。該フィルムをヨウ素0.20g/l、ヨウ化カリウム50g/lよりなる水溶液中に18°Cにて360秒浸漬し、次いでホウ酸45g/l、ヨウ化カリウム55g/l、ヨウ素2ppmの組成の水溶液に浸漬すると共に、51.5°Cにて同時に5.5倍に一軸延伸を行い、つづく12分間にわたってホウ酸処理を行った。次に6°Cの水洗槽に4秒間浸漬した後、ヨウ素0.15g/l、ヨウ化カリウム20g/lよりなる水溶液中に15°Cにて15秒間浸漬し、次に55°Cにて2分間乾燥し、厚み20μm、幅640mmでフィルムの幅方向中央の透過率が44.7%、偏光度が99.95%で、含水量14.3重量%の偏光フィルムを得た。

【0036】得られた偏光フィルムの両面に、以下のカレンダーロール処理装置を使用して、以下の条件のカレンダーロール処理をおこなった。カレンダー仕上げロールは、温度コントロール可能な、外径250mm、面長900mm、芯材質SS410、表面ハードクロムメッキ20μm、表面粗度0.2Sの金属ロールであり、駆動が付いており、表面の速度は5.10m/分で回転しており、カレンダーバックロールは、外径150mm、面長640mm、片側ゴム厚み20mm、芯材質SS410、ゴム硬度（JIS K6301の硬さ試験のスプリング式硬さ試験A形の試験法に準じて測定）は78（度）で600番のサンドペーパーで回転研磨したゴムロールであり、偏光フィルムの位置と面長640mmが一致するように配置されており、駆動は付いておらず、その表面速度は、偏光フィルムのライン速度と同様の5.00m/分で回転していた。かかるカレンダー仕上げロール及びカレンダーバックロールでニップして1000kg/mの圧力で加圧して、ロール温度38°Cにてカレンダーロール処理を偏光フィルムの片面におこなう操作を、両面にそれぞれ2回おこない、含水量10.5重量%、光沢度95.50（度）の偏光フィルムを得た。

【0037】得られた偏光フィルムの両面に、厚み8μmの三酢酸セルロースフィルム（接着面をアルカリケン化した670mm幅のフィルム）を、偏光フィルムが三酢酸セルロースフィルムの幅方向の中央に入るよう

13

配置しながら、直径150mm（ゴム厚み15mm、芯金直径120mm、ロール面長950mm、芯金材質SS410）で硬度85（度）のEPDMゴムロールを1500番のサンドベーパーにより回転研磨したゴムロール2本1組を使用して、各張力が10kg/1mm幅、ラミネートスピード5.00m/分、加圧の線圧力が200kg/1mm幅、クリアランス無し（ラミロール間にフィルムを挟まない状態においてラミロール間が0μmまで近づけることができる状況。）で、ポリビニルアルコール系接着剤、重合度1700、ケン化度99.9モル%のポリビニルアルコール2.8%水溶液を給液しながら、三層（TACフィルム／接着剤／偏光フィルム／接着剤／TACフィルム）を同時ラミネートした後、その後85°Cにて4分乾燥して偏光板を得た。

【0038】得られた偏光板を幅方向全長、長手方向長1000mmに切り取り評価用の偏光板サンプルを得た。得られた偏光板の評価を以下のように行った。

・（クニック欠陥）偏光板サンプルの偏光フィルム耳端より13mmを除いた面積部分のクニック欠陥を、目視検査にて場所を確認後、顕微鏡にて大きさを確認しながら個数を数えた。

・（シワ欠陥）偏光板サンプルの偏光フィルム耳端より13mmを除いた面積部分のシワ欠陥を、目視検査にて、偏光板に対して、垂直方向と垂直より角度45度傾いた方向より観察して、場所を確認後、顕微鏡にて太さを確認しながら本数を数えた。

・（タテナミ欠陥）偏光板サンプルの偏光フィルム耳端より13mmを除いた面積部分のタテナミ欠陥を、目視検査にて、偏光板に対して、垂直方向と垂直より角度45度傾いた方向より観察して、場所を確認後、顕微鏡にて高さ（断面より測定）を確認しながら本数を数えた。クニック欠陥については、60μm以上の大きさで、0.1個/mm<sup>2</sup>以下の分布を○、それを越えるものを×とし、シワ欠陥については、シワがないか、シワがあってもそのシワが50μm未満の太さのものを○、発生したシワが50μm以上の太さのものを×とし評価し、タテナミ欠陥については、タテナミがないか、タテナミがあってもそのタテナミが0.1mm未満の高さのものを○、発生したタテナミの高さが0.1mm以上の高さのものを×とし評価した。

#### 【0039】実施例2

実施例1で用いた偏光フィルムにかえて下記条件で製造した位相差フィルムを用いた以外は実施例1と同様にして位相差板を得た。切り取り評価用の位相差板サンプルを得て、実施例1と同様に評価した。平均重合度5500、ケン化度99.6モル%のポリビニルアルコールを水に溶解し、2.0%の溶液を得た。該溶液をポリエチレンテレフタレートフィルム上に流延後乾燥し原反フィルム（65μm、幅650mm）を得た。該フィルムを190°Cにて1.03倍延伸して、含水量0.8重量%

14

の位相差フィルムを得た。尚、カレンダーロール処理後の光沢度は96.0であり、含水量は0.4重量%であったので、偏光フィルムと同じく再水分調整なしで、ラミネートした。

#### 【0040】比較例1

実施例1のカレンダーロール処理の温度を3°Cにかえた以外は実施例1と同様にして偏光板を得た（尚、カレンダーロール処理後の偏光フィルムの光沢度は88.7（度）であり、含水量は13.3重量%であった）。切り取り評価用の偏光板サンプルを得て、実施例1と同様に評価した。

#### 【0041】比較例2

実施例1のカレンダーロール処理の温度を55°Cにかえた以外は実施例1と同様にして偏光板を得た（尚、カレンダーロール処理後の偏光フィルムの光沢度は87.9（度）であり、含水量は9.3重量%であった）。切り取り評価用の偏光板サンプルを得て、実施例1と同様に評価した。

#### 【0042】比較例3

実施例1のカレンダーロール処理のニップ線圧を40kg/mにかえた以外は実施例1と同様にして偏光板を得た（尚、カレンダーロール処理後の偏光フィルムの光沢度は85.5（度）であり、その時の含水量は13.8重量%であった）。切り取り評価用の偏光板サンプルを得て、実施例1と同様に評価した。

#### 【0043】比較例4

実施例1のカレンダーロール処理のニップ線圧を11000kg/mにかえた以外は実施例1と同様にして偏光板を得た（尚、カレンダーロール処理後の偏光フィルムの光沢度は87.7（度）であり、その時の含水量は9.8重量%であった）。切り取り評価用の偏光板サンプルを得て、実施例1と同様に評価した。

#### 【0044】比較例5

実施例1の55°Cにて2分間の乾燥にかえて、98°Cにて13分間の乾燥をおこなって含水量0.07重量%の偏光フィルムを得た以外は実施例1と同様にして偏光板を得た（尚、カレンダーロール処理後の偏光フィルムの光沢度は86.3（度）であり、その時の含水量は0.06重量%であった）。切り取り評価用の偏光板サンプルを得て、実施例1と同様に評価した。

#### 【0045】比較例6

実施例1の55°Cにて2分間の乾燥にかえて、30°Cにて1分間の乾燥をおこなって含水量23.5重量%の偏光フィルムを得た以外は実施例1と同様にして偏光板を得た（尚、カレンダーロール処理後の偏光フィルムの光沢度は85.4（度）であり、その時の含水量は19.3重量%であった）。切り取り評価用の偏光板サンプルを得て、実施例1と同様に評価した。実施例と比較例のクニック欠陥、シワ欠陥、タテナミ欠陥の評価結果を表50-1に示した。

【0046】

15

	クニック欠陥	シワ欠陥	タテナミ欠陥
実施例1	○	○	○
" 2	○	○	○
比較例1	×	×	×
" 2	×	×	×
" 3	×	×	×
" 4	×	×	×
" 5	×	×	×
" 6	×	×	×

【0047】

【発明の効果】本発明は、セルロース系フィルムとポリビニルアルコール系フィルムとをロールラミネートするにあたり、含水量が0.3～16.5重量%に調整された、ポリビニルアルコール系フィルムの少なくとも片側の表面を5～45°Cで、ニップ線圧50～10000kg/mのカレンダーロールで処理をした後に、ラミネー※

16

\*\*【表1】

※トするため、クニック欠陥、シワ欠陥、タテナミ欠陥がなく、外観性能良好な積層体が得られ、特にポリビニルアルコール系フィルムが偏光フィルムや位相差フィルム等の光学積層体の時は、ワープロ、テレビジョン、パソコン、カーナビゲーション等の用途のTFTタイプ液晶表示装置に有用である。

## 【手続補正書】

【提出日】平成10年2月12日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正内容】

【0008】

【発明の実施の形態】以下、本発明について具体的に説明する。本発明の積層法で使用される基材について述べる。本発明で使用されるセルロース系フィルムの原料となるセルロースエステルとしては、セルロースと酸のエステルであれば特に限定しないが、好ましくは、セルロースと脂肪酸のエステルで、セルローストリアセテート、セルロースジアセテート、セルローストリプロピオネート、セルロースジプロピオネート等が使用される。かかるセルロース系フィルムの原料の光学積層体用途のものとしては、低複屈折の面と高透過率の面よりセルローストリアセテート(三酢酸セルロース)が好適であり、該三酢酸セルロースフィルム(TACフィルム)の市販品としては具体的に、富士写真フィルム社製「UV-50」、「SH-50」、「UV-80」、「SH-80」、「TD-80U」や、コニカ社製の「三酢酸セルロース80μmシリーズ」、ロンザジャパン社製「三酢酸セルロース80μmシリーズ」等を挙げることができ、これらの中で、透過率と耐久性の面でTFTタイプ液晶表示装置に適合する改善を行ったTACフィルムが更に好ましい。該セルロース系フィルムの厚みは特に限定されないが、20～150μmが好ましく、更には50～85μmが好ましい。尚、これらのセルロース系

フィルムは、ラミネート時の接着補強のために、通常、その接着面をアルカリケン化やコロナ処理等の表面改質されて実用に供される。

## 【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0035

【補正方法】変更

【補正内容】

【0035】

【実施例】次に実施例を挙げて更に詳しく説明する。尚、実施例中、「%」とあるのは特に断りのない限り重量基準である。

実施例1

平均重合度5500、ケン化度9.6モル%のポリビニルアルコールを水に溶解し2.0%の溶液を得た。該溶液をポリエチレンテレフタレートフィルム上に流延後乾燥し原反フィルム(65μm、幅1200mm)を得た。該フィルムをヨウ素0.20g/1、ヨウ化カリウム50g/1よりなる水溶液中に18°Cにて360秒浸漬し、次いでホウ酸45g/1、ヨウ化カリウム55g/1、ヨウ素2ppmの組成の水溶液に浸漬すると共に、51.5°Cにて同時に5.5倍に一軸延伸を行い一つ12分間にわたってホウ酸処理を行った。次に6°Cの水洗槽に4秒間浸漬した後、ヨウ素0.15g/1、ヨウ化カリウム20g/1よりなる水溶液中に15°Cにて15秒間浸漬し、次に55°Cにて2分間乾燥し、厚み20μm、幅640mmで含水量14.3重量%の偏光フィルムを得た。